

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-226438

(43)Date of publication of application : 15.08.2000

(51)Int.Cl.

C08G 59/62
C08K 3/00
C08K 5/3477
C08L 63/00

(21)Application number : 11-026602

(71)Applicant : SANYU RESIN KK

(22)Date of filing : 03.02.1999

(72)Inventor : UEDA KENJI

KITAGAWA HIDEO

UENO KENJI

UENO KENICHI

(54) FLAME-RETARDED EPOXY RESIN COMPOSITION

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain an epoxy resin composition showing excellent flame retardancy and electrical reliability in spite of containing no substance adding a load to the environment and giving a film which, when used to cover a film capacitor, inhibits fire spread to the capacitor by compounding an epoxy resin with a triazine-ring-containing phenolic curing agent with an inorganic filler, an inorganic ion exchanger, a melamine cyanurate compound, and a cure accelerator.

SOLUTION: The epoxy resin used is desirably a bisphenol epoxy resin or cresol novolak epoxy resin. The epoxy resin content is as high as about 20-50 wt.% based on the composition. The composition is obtained by compounding 100 pts.wt. epoxy resin with about 35 to 80 pts.wt. triazine-ring-containing phenolic curing agent, about 60-300 pts.wt. inorganic filler, about 1-10 pts.wt. melamine cyanurate compound, and about 0.3-4 pts.wt. cure accelerator. It may optionally contain a surface modifier, a coupling agent, a flow modifier, a pigment, carnauba wax, etc.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of

0.21-4.8% melamine cyanurate
7.9-33.2% phenol-triazine
24-68.8% filler

AN 2000:562865 CAPLUS
 DN 133:171156
 ED Entered STN: 15 Aug 2000
 TI Fire- and moisture-resistant epoxy resin compositions
free of halide-, phosphorus-, and antimony-type fireproofing agents, and
 film capacitors coated with the compositions
 IN Ueda, Kenji; Kitakawa, Hideo; Ueno, Kenji; Ueno, Kenichi
 PA Sanyu Range Co., Ltd., Japan
 SO Jpn. Kokai Tokkyo Koho, 6 pp.
 CODEN: JKXXAF
 DT Patent
 LA Japanese
 IC ICM C08G059-62
 ICS C08K003-00; C08K005-3477; C08L063-00
 CC 76-10 (Electric Phenomena)
 Section cross-reference(s): 42

FAN.CNT 1

| PATENT NO. | KIND | DATE | APPLICATION NO. | DATE |
|--------------------|------|----------|-----------------|----------|
| PI JP 2000226438 | A2 | 20000815 | JP 1999-26602 | 19990203 |
| PRAI JP 1999-26602 | | 19990203 | | |

CLASS

| PATENT NO. | CLASS | PATENT FAMILY CLASSIFICATION CODES |
|---------------|-------|--------------------------------------|
| JP 2000226438 | ICM | C08G059-62 |
| | ICS | C08K003-00; C08K005-3477; C08L063-00 |

AB The compns. contain epoxy resins, triazine ring-containing phenolic curing agents, inorg. fillers, inorg. ion exchangers, melamine cyanurates, and curing accelerators. A film capacitor was coated with a composition containing Epikote 1002, KA 7055 (triazine ring-containing phenolic resin),
 H 31 (alumina hydrate), PP 360 (Ph3P), IXE 700 (inorg. ion exchanger), MC 410 (melamine cyanurate), and other additives, and cured at 120° (coating thickness 0.6-0.8 mm on each side) to show UL-94 flammability rating V-0 and good moisture resistance.

ST epoxy resin coating fire moisture resistance; film capacitor coating fire moisture resistance; triazine modified phenolic resin crosslinker epoxy; alumina filler melamine cyanurate film capacitor; inorg ion exchanger coating film capacitor

IT Electric insulators
 (coatings; fire- and moisture-resistant epoxy resin compns. for film capacitors)

IT Capacitors
 (film; fire- and moisture-resistant epoxy resin compns. for film capacitors)

IT Fireproofing agents
 (fire- and moisture-resistant epoxy resin compns. for film capacitors)

IT Epoxy resins, properties
 RL: DEV (Device component use); IMF (Industrial manufacture); POF (Polymer in formulation); PRP (Properties); TEM (Technical or engineered material use); PREP (Preparation); USES (Uses)
 (fire- and moisture-resistant epoxy resin compns. for film capacitors)

IT Coating materials
 (fire-resistant; fire- and moisture-resistant epoxy resin compns. for film capacitors)

IT Anion exchangers
 Fillers
 (inorg.; fire- and moisture-resistant epoxy resin compns. for film capacitors)

IT Crosslinking agents
 (triazine ring-containing phenolic resins; fire- and moisture-resistant epoxy resin compns. for film capacitors)

sb +
halo-free
MC

IT Phenolic resins, uses
 RL: MOA (Modifier or additive use); RCT (Reactant); RACT (Reactant or reagent); USES (Uses)
 (triazine ring-containing, crosslinking agents; fire- and moisture-resistant **epoxy resin** compns. for film capacitors)

IT Coating materials
 (water-resistant; fire- and moisture-resistant **epoxy resin** compns. for film capacitors)

IT 603-35-0, PP 360, uses
 RL: CAT (Catalyst use); USES (Uses)
 (catalyst; fire- and moisture-resistant **epoxy resin** compns. for film capacitors)

IT 287492-44-8, KA 7055
 RL: MOA (Modifier or additive use); RCT (Reactant); RACT (Reactant or reagent); USES (Uses)
 (crosslinking agent; fire- and moisture-resistant **epoxy resin** compns. for film capacitors)

IT 21645-51-2, H 31, properties 60676-86-0, RD 8
 RL: DEV (Device component use); MOA (Modifier or additive use); PRP (Properties); USES (Uses)
 (filler; fire- and moisture-resistant **epoxy resin** compns. for film capacitors)

IT 287492-45-9P, Epikote 1002-KA 7055 copolymer 287492-46-0P, Epikote 1002-Epikote 180S65-KA 7055 copolymer 287492-47-1P, Epikote 180S65-KA 7055 copolymer 287916-98-7P, BTDA-Epikote 1002-Epikote 180S65-KA 7055 copolymer
 RL: DEV (Device component use); IMF (Industrial manufacture); POF (Polymer in formulation); PRP (Properties); TEM (Technical or engineered material use); PREP (Preparation); USES (Uses)
 (fire- and moisture-resistant **epoxy resin** compns. for film capacitors)

IT 37640-57-6, MC 410 287916-97-6, MC 420
 RL: DEV (Device component use); MOA (Modifier or additive use); PRP (Properties); USES (Uses)
 (fireproofing aid; fire- and moisture-resistant **epoxy resin** compns. for film capacitors)

IT 155808-51-8, IXE 700
 RL: DEV (Device component use); MOA (Modifier or additive use); PRP (Properties); USES (Uses)
 (inorg. ion exchanger; fire- and moisture-resistant **epoxy resin** compns. for film capacitors)

DERWENT-ACC-NO: 2001-034270

DERWENT-WEEK: 200552

COPYRIGHT 2005 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Fire retardant epoxy resin composition used in a film
condenser and electronic parts sealing.

PATENT-ASSIGNEE: SANYU RESIN KK[SANYN]

PRIORITY-DATA: 1999JP-0026602 (February 3, 1999)

PATENT-FAMILY:

| PUB-NO | PUB-DATE | LANGUAGE | PAGES | MAINIPC |
|------------------------|-----------------|----------|-------|-------------|
| <u>JP 2000226438 A</u> | August 15, 2000 | N/A | 006 | C08G 059/62 |

APPLICATION-DATA:

| PUB-NO | APPL-DESCRIPTOR | APPL-NO | APPL-DATE |
|---------------|-----------------|---------------|------------------|
| JP2000226438A | N/A | 1999JP0026602 | February 3, 1999 |

INT-CL (IPC): C08G059/62, C08K003/00, C08K005/3477, C08L063/00

ABSTRACTED-PUB-NO: JP2000226438A

BASIC-ABSTRACT:

NOVELTY - Epoxy resin composition comprising an epoxy resin, a triazine-cycle-containing phenol-based curing agent, an inorganic filler, an inorganic ion-exchanged body and a curing accelerator excels in electric insulation and wet reliability and fire retardancy.

DETAILED DESCRIPTION - Epoxy resin composition comprises (A) epoxy resin, (B) triazine-cycle-containing phenol-based curing agent, (C) inorganic filler, (D) inorganic ion-exchanged body, (E) melamine cyanurates and (F) curing accelerator.

USE - Product is used in film condenser and a sealant for electronic parts.

ADVANTAGE - Product excels in fire retardancy as well as electric insulation and moisture reliability and is capable of preventing a film fire spreading.

CHOSEN-DRAWING: Dwg.0/0

TITLE-TERMS: FIRE RETARD EPOXY RESIN COMPOSITION FILM CONDENSER ELECTRONIC PART
SEAL

DERWENT-CLASS: A21 A85 E13 G02 L03

CPI-CODES: A05-A01E2; A08-D01; A08-F; A08-R01; A12-E04; A12-E07B; E07-D13B;
G02-A05B; G02-A05D; L03-D05A;

CHEMICAL-CODES:

Chemical Indexing M3 *01*

Fragmentation Code

F000 F521 M280 M320 M413 M510 M521 M530 M540 M782

M904 M905 M910 Q130 Q132 R038

Specific Compounds

01193K 01193M

Registry Numbers

1193U

Chemical Indexing M3 *02*

Fragmentation Code

* NOTICES *

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] Especially this invention is useful as an object for electric insulation, and relates to the fire-resistant epoxy resin constituent which does not burn the capacitor itself with a thin film comparatively in a film capacitor at the time of mounting, either excluding a halogen and antimony.

[0002]

[Description of the Prior Art] As a purpose of the epoxy resin constituent used for a capacitor, the pre-insulation of a coil, etc., fire-resistant grant is also important as well as insulating maintenance.

[0003] For this reason, add a halogenated compound conventionally, the epoxy resin and antimony compound which have a halogen atom in a molecule are used together, or the phosphorus compound is used as a flame retarder.

[0004] While these compounds discover good fire retardancy, they generate harmful nature gas, such as hydrogen halide harmful at the time of combustion. Moreover, it is in the inclination for use of the halogen series flame retardant with which generating of dioxin is suspected, and the antimony compound with which carcinogenic possibility is pointed out to be controlled. Various alternative flame retarders are examined corresponding to such an inclination.

[0005] However, in using a metal hydrate, for example, in order to make sufficient fire retardancy discover, it must add in large quantities, and there is a problem in the hardenability of resin, the reinforcement of a hardened material, etc. Moreover, by the conventional nitrogen content fire retardancy system, it is inferior to the electric dependability (especially moisture-proof electrical property) when mounting as electronic parts, and the practical demand as an object for the electronic-parts closures cannot be borne.

[0006] Moreover, although the capacitor itself will not burn if it paints thickly when covering paint is carried out at a capacitor, if flame hits when it paints thinly, a crack will be generated, and it will spread to an inner film, and the capacitor itself will burn. Even if the paint film is thin, the epoxy resin constituent which gives the engine performance which prevents the own combustion of a capacitor is not known.

[0007]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] Without including environmental loading material, such as a halogenated compound, a phosphorus compound, and an antimony compound, this invention is excellent in fire retardancy and electric dependability, and aims at offering the fire-resistant epoxy resin constituent which prevents the spread of a fire on a film to a film capacitor at the time of mounting.

[0008]

[Means for Solving the Problem] In order to attain said purpose, when this invention persons inquired wholeheartedly, they completed a header and this invention for having the fire retardancy excellent in the epoxy resin constituent which comes to contain an epoxy resin, a triazine ring content phenol system curing agent, an inorganic bulking agent, an inorganic ion exchanger, a melamine SHIANU rate compound, and a hardening accelerator, an electrical insulating characteristic, and humidity-tolerant

reliability.

[0009] That is, this invention offers an epoxy resin constituent and a film capacitor as shown below.

[0010] 1. Epoxy resin constituent which comes to contain (A) epoxy resin, (B) triazine ring content phenol system curing agent, (C) inorganic bulking agent, (D) inorganic ion exchanger, (E) melamine SHIANU rate compound, and (F) hardening accelerator.

[0011] 2. Film capacitor which above-mentioned term 1 comes to cover with epoxy resin constituent of publication.

[0012]

[Embodiment of the Invention] The epoxy resin constituent of this invention The (A) epoxy resin, (B) triazine ring content phenol system curing agent, (C) An inorganic bulking agent, the (D) inorganic ion exchanger, (E) melamine SHIANU rate compound, and the (F) hardening accelerator are contained as an indispensable component. Other components (for example, a surface treatment agent, a coupling processing agent, a flow agent, a pigment, carnauba wax, a laser mark color coupler, etc.) can be contained in the range which is not contrary to the purpose of this invention if needed.

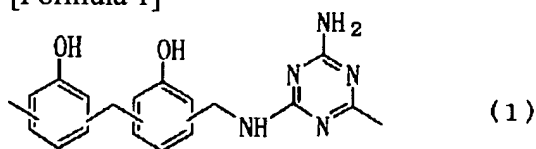
[0013] (A) It is desirable to use the epoxy resin which has two or more epoxy groups into 1 molecule as an epoxy resin epoxy resin. As such an epoxy resin, a bisphenol mold epoxy resin, a phenol novolak mold epoxy resin, a cresol novolak mold epoxy resin, a TORIFE Norian methane mold epoxy resin, etc. are mentioned, for example. Desirable epoxy resins are a bisphenol mold epoxy resin, a cresol novolak mold epoxy resin, etc. As an epoxy resin, you may use an one-sort independent and may use it combining two or more sorts. It is desirable to use the class of epoxy resin and a rate by the use application of an epoxy resin constituent, adjusting them suitably. For example, when a high glass transition temperature is required of a hardened material, it is desirable to increase the rate of a cresol novolak mold epoxy resin.

[0014] The content of the epoxy resin in an epoxy resin constituent can be preferably made into about 30 - 40 % of the weight about 20 to 50% of the weight.

[0015] (B) Use a triazine ring content phenol system curing agent as an indispensable curing agent as a curing agent curing agent. This triazine ring content phenol system curing agent is useful to giving fire retardancy to an epoxy resin constituent. A triazine ring content phenol system curing agent has two or more phenolic hydroxyl groups in 1 molecule, it is desirable that the average hydroxyl equivalent is 100-350, and it is more desirable that it is 110-250.

[0016] As such a triazine ring content phenol system curing agent, it is a formula [0017], for example.

[Formula 1]



[0018] The phenol novolak resin which comes out, and has two or more phenolic hydroxyl groups in 1 molecule which is expressed, and has a triazine ring in the molecular structure is desirable.

[0019] A triazine ring content phenol system curing agent can make a melamine, a phenol, and formaldehyde able to react, and can be obtained. Moreover, nitrogen volume may be adjusted using benzoguanamine.

[0020] the amount of the triazine ring content phenol system curing agent used -- the epoxy resin 100 weight section -- receiving -- 35 - 80 weight section extent -- it can consider as 45 - 60 weight section extent preferably.

[0021] Moreover, as a curing agent, the curing agent which has phenolic hydroxyl groups, such as phenol novolak resin, bisphenol A, and Bisphenol F, with the above-mentioned triazine ring content phenol system curing agent may be used together. Moreover, an acid-anhydride system curing agent may be used together. As an acid-anhydride system curing agent, well-known things, such as trimellitic anhydride and pyromellitic dianhydride, can use it widely.

[0022] As for the blending ratio of coal of a curing agent to an epoxy resin, it is desirable to blend a

curing agent further 0.8 to about 1.0 0.7 to about 1.2 by the chemical equivalent to an epoxy resin 1. That is, it is desirable that loadings are set up so that the ratio (the number of functional groups / the number of epoxy groups) of the number of functional groups in a full hard-ized agent and the number of epoxy groups in [all] an epoxy resin may become within the limits of 0.7 to about 1.2 and further 0.8 to about 1.0. When loadings are within the limits of this, the capacity in physical reinforcement or an electrical property can be demonstrated to the maximum extent.

[0023] (C) Each well-known thing can be used as an inorganic bulking agent inorganic bulking agent. As an inorganic bulking agent, fused silica powder, spherical fused silica powder, crystal silica powder, a hydration magnesia, a hydration alumina, talc, a calcium carbonate, etc. are mentioned, for example.

[0024] When fire retardancy is taken into consideration, metal oxide hydrates, such as a hydration magnesia and a hydration alumina, are desirable. On the other hand, other inorganic bulking agents can be used in the field than to which greater importance is attached to solder crack nature or thermo-cycle nature. According to the application which uses an epoxy resin constituent, it can be used combining various kinds of inorganic bulking agents.

[0025] the amount of the inorganic bulking agent used -- the epoxy resin 100 weight section -- receiving -- 60 - 300 weight section extent -- it can consider as 100 - 220 weight section extent preferably.

[0026] With the gestalt of desirable operation, the content of the inorganic bulking agent in an epoxy resin constituent is preferably made into about 40 - 60 % of the weight about 30 to 70% of the weight from points, such as a fluidity and melt viscosity. When not fulfilling this range, absorptivity becomes large and there is an inclination for a physical property to be inferior. On the other hand, when exceeding this range, there is an inclination to worsen, and for a fluidity to have a bad influence on a moldability and to cause a poor appearance.

[0027] (D) The epoxy resin constituent of inorganic ion exchanger this invention contains an inorganic ion exchanger as a damp-proof amelioration agent.

[0028] An inorganic ion exchanger is inorganic ion-exchange nature matter which has - OH radical in a constituent, and an inorganic anion exchanger, an inorganic cation exchanger, and inorganic both ion exchangers are mentioned. It comes to consist of these inorganic ion exchangers for example, a polyvalent metal acid, its salt, a polyvalent metal water oxide, etc.

[0029] As for an inorganic ion exchanger, it is desirable that the total exchange capacity of ion is 1 - 10 meq/g, and it is more desirable that it is 3 - 7 meq/g.

[0030] In the case of the exchange capacity of a chlorine ion, in order to calculate the exchange capacity of ion, 1g of inorganic ion exchangers is added to 0.1 N-HCl / 50ml of 0.1 N-NaCl mixed solutions, and after carrying out shaking stirring for 24 hours, the chlorine ion concentration and pH in liquid can be measured and calculated. Moreover, in calculating the exchange capacity of sodium ion, after adding to 0.1 N-NaOH / 50ml of 0.1 N-NaCl mixed solutions and stirring 0.5g of inorganic ion exchangers for 24 hours, for example, the sodium ion concentration and pH in liquid can be measured and calculated.

[0031] As an inorganic ion exchanger, although both ion exchangers, such as cation exchanger; calcium systems, such as anion exchanger; zirconium systems, such as an aluminum system, a zirconium system, and a magnesium-aluminum system, and a titanium system, etc. are mentioned, use of an anion exchanger is desirable. In an anion exchanger, use of a magnesium-aluminum system demonstrates effectiveness most.

[0032] the amount of the inorganic ion exchanger used -- the epoxy resin 100 weight section -- receiving -- 0.01 - 5 weight section extent -- it can consider as 0.5 - 3 weight section extent preferably. When not fulfilling this range, there is an inclination it to become difficult to prevent degradation of the electrical property of *****. On the other hand, when exceeding this range, the fall of the physical properties of a hardened material etc. tends to take place.

[0033] (E) The epoxy resin constituent of melamine SHIANU rate compound this invention contains a melamine SHIANU rate compound as a fire-resistant assistant. As a melamine SHIANU rate compound, the melamine SHIANU rate (melamine isocyanuric acid addition product) expressed with formula: $C_3H_6N_6$ and $C_3H_3N_3O_3$ and its derivative are desirable.

[0034] This melamine SHIANU rate compound is useful to forming the coat which intercepts air at the

time of combustion of an epoxy resin constituent. Moreover, when an epoxy resin constituent is mounted in a film capacitor, the spread of a fire on the film in a capacitor is prevented, and it is useful to own flameproofing of a capacitor.

[0035] the amount of the melamine SHIANU rate compound used -- the epoxy resin 100 weight section -- receiving -- 1 - 10 weight section extent -- it can consider as 3 - 7 weight section extent preferably.

[0036] (F) As a hardening-accelerator hardening accelerator, the well-known hardening accelerator large [an imidazole, a denaturation imidazole a tertiary amine, triphenyl phosphine, and] and used, for example may be used by the one-sort independent, and you may use it combining two or more sorts. Desirable hardening accelerators are an imidazole, a denaturation imidazole, and triphenyl phosphine.

[0037] the amount of the hardening accelerator used -- the epoxy resin 100 weight section -- receiving -- 0.3 - 4 weight section extent -- it can consider as 1.5 - 3 weight section extent preferably.

[0038] In the epoxy resin constituent of this invention, auxiliary components, such as a surface treatment agent, a coupling processing agent, a flow agent, a pigment, carnauba wax, and a laser mark color coupler, may be added if needed.

[0039] The epoxy resin constituent of this invention can be manufactured by the general manufacture approach using a general manufacture facility. For example, it can manufacture only by performing vacuum degassing after mixing with a roll, and mixing by mixers, such as a planetary mixer. Even when manufacturing the epoxy resin constituent of this invention as powder coatings, it can manufacture by the general manufacture approach. For example, what is necessary is to carry out mixed stirring of each combination component by a mixer etc., to carry out melting mixing stirring with an extrusion melting kneading agitator etc., and for a grinder etc. to grind and just to carry out classification processing, after carrying out cooling solidification of the mixture obtained.

[0040] Even if the epoxy resin constituent of this invention does not contain a halogen series flame retardant, a phosphorus series flame retardant, an antimony system flame retarder, etc., it discovers the fire retardancy which was excellent as compared with the conventional fire-resistant epoxy resin constituent, and has the electrical insulating characteristic and humidity-tolerant reliability which were moreover excellent.

[0041] Especially the epoxy resin constituent of this invention fits the application of an IC package, the insulating material of electronic parts, etc., when it is used as powder coatings. Especially the epoxy resin constituent of this invention is a fire-resistant constituent for the insulating closures which is suitable especially as a coating used [coil / a ceramic condenser, a film capacitor, a resister network,] for paint of a film capacitor.

[0042] Since especially the epoxy resin constituent of this invention passes UL-1414 fire-retardancy specification, when mounted in a capacitor, it can prevent the own combustion of a capacitor. This engine performance can be demonstrated even when paint thickness is thin (0.6-0.8mm of thickness).

[0043] What is necessary is to carry out the preheating of the film capacitor component to about 100-120 degrees C, and just to carry out actual hardening at about 100-120 degrees C, after using a fluidized bed coating process powder coating machine and painting a fine-particles epoxy resin constituent to this in order to manufacture a film capacitor using the epoxy resin constituent of this invention.

[0044]

[Example] Hereafter, an example explains this invention still more concretely.

[0045] Mixed stirring of the mixture of the presentation (weight section) shown in one to example 7 table 1 was carried out by the mixer, melting mixing stirring was carried out with the extrusion melting kneading agitator, after carrying out cooling solidification of the obtained mixture, the grinder ground, classification processing was performed and the epoxy resin constituent was obtained.

[0046] In addition, it unified so that the equivalent of an epoxy resin and a curing agent might be set to 1:1, and the loadings of an inorganic bulking agent (a hydration alumina, fused silica) were made equal to the total quantity of an epoxy resin and a curing agent.

[0047] The detail of each component is as follows.

[0048] Bisphenol A mold epoxy resin (A) : - Oil-ized shell epoxy company make, Epoxy resins other than trade name Epicoat 1002(A) (cresol novolak mold epoxy resin) : Oil-ized shell epoxy company

make, Trade name Epicoat 180S65 and triazine ring content phenol resin (B) : The Dainippon Ink make, Phenol resin other than 7055 and trade name KA-220[average hydroxyl equivalent] (B) (phenol novolak mold resin) : The Dainippon Ink make, Trade name TD-2131 and an acid-anhydride curing agent (benzophenone tetra-dicarboxylic acid anhydride) : The product made from ARUKO, Trade name BTDA and a hydration alumina : The Showa Denko K.K. make, trade name H-31 and made in fused silica:Tatsumori, Trade name RD-8 and a hardening accelerator (triphenyl phosphine) : The C.I. Kasei make, trade name PP-360 and inorganic ion exchanger: -- the Toagosei make, trade name IXE-700, and Cl-total exchange capacity 4.3 -- meq/g and melamine SHIANU rate compound (1):Nissan chemistry company make -- Trade name MC-410 and a melamine SHIANU rate compound (2) : The Nissan chemistry company make, Trade-name MC-420 and a silane coupling agent: The Chisso Corp. make, trade name Sila-Ace S-510 and surface treatment agent:Kyoei Kagaku K.K. make, trade name MIKIREBE ring MK concentrated carbon black:Mitsubishi Chemical make, trade name MA-100.

[0049] About these epoxy resin constituents, as it was the following, many properties were evaluated. A result is shown in Table 1.

[0050] - The fire-resistant sex-test UL-94 resin constituent was stiffened, the test piece with a thickness of 1.0mm was produced, and the fire-resistant judgment trial of a hardened material was performed by the test condition set to UL-94 fire-retardancy specification. It is shown that V-0 has cleared fire-resistant level, and it is shown that HB has not cleared fire-resistant level.

[0051] The preheating of the UL-1414 film-capacitor component was supplied and carried out to the circuit system thermostat by Tabai Espec Corp. set as 100 degrees C for 60 minutes, to this, the A Juridical Foundation the Institute of Clinical Psychiatry fluidized bed coating process powder coating machine was used, and the fine-particles epoxy resin constituent was painted. It was made for the paint thickness of a resin constituent to be set to 0.6-0.8mm in one side. In the above-mentioned thermostat, actual hardening of this painted film capacitor was carried out in 120 degrees C / 90 minutes. About the obtained film capacitor, the fire-resistant trial of a resin hardened material (film capacitor) was performed by the test condition set to UL-1414 fire-retardancy specification. O Having not spread to the film is shown and it is shown that x spread to the film.

[0052] - what painted and hardened the epoxy resin constituent like the above-mentioned UL-1414 for the humidity test film capacitor component -- the constant temperature of 85 degrees C / 85%RH -- it was left in the constant humidity chamber and the capacitor dielectric dissipation factor after 1500-hour progress was measured. It is the outstanding insulating material for electronic parts, so that this value is small.

[0053] The mixture of the presentation (weight section) shown in one to example of comparison 5 table 2 was processed like examples 1-7, and the epoxy resin constituent was obtained. About these epoxy resin constituents, many properties were evaluated like examples 1-7. A result is shown in Table 2.

[0054] In addition, the constituent of the examples 4 and 5 of a comparison contains environmental loading material (Lynn, a halogenation compound, antimony trioxide, etc.) so that clearly from the constituent.

[0055]

[Table 1]

表 1

| | | 実施例 1 | 実施例 2 | 実施例 3 | 実施例 4 | 実施例 5 | 実施例 6 | 実施例 7 |
|-------------------------------------|--------------------|----------|----------|----------|----------|----------|----------|----------|
| 成分組成とその重量部数 | ビスフェノールA型エポキシ樹脂(A) | 100 | — | 50 | 50 | 50 | 50 | 50 |
| | (A) 以外のエポキシ樹脂 | — | 100 | 50 | 50 | 50 | 50 | 50 |
| | トリアジン環含有フェノール樹脂(B) | 60 | 80 | 70 | 50 | 35 | 50 | 70 |
| | (B) 以外のフェノール樹脂 | — | — | — | 10 | 20 | — | — |
| | 酸無水物硬化剤 | — | — | — | — | — | 30 | — |
| | 水和アルミナ | 160 | 180 | 170 | — | 155 | 180 | 170 |
| | 溶融シリカ | — | — | — | 160 | — | — | — |
| | 硬化促進剤 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| | 無機イオン交換体 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 |
| | マミンシアレート化合物 (1) | 8 | 8 | 4 | 8 | 8 | 8 | — |
| | マミンシアレート化合物 (2) | — | — | — | — | — | — | 8 |
| | シランカップリング剤 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 |
| | 表面改質剤 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 |
| | カーボンブラック | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 |
| 難燃性 UL-94 | | V-0 | V-0 | V-0 | V-0 | V-0 | V-0 | V-0 |
| 難燃性 UL-1414 (片側膜厚0.6~0.8mm) | | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |
| 耐湿後のコンデンサ誘電正接(85°C/85%RH) 1500時間経過後 | | 1.7% | 1.7% | 1.7% | 1.7% | 1.8% | 1.7% | 1.7% |

[0056]

[Table 2]

表 2

| | | 比較例 1 | 比較例 2 | 比較例 3 | 比較例 4 | 比較例 5 |
|------------------------------------|--------------------|----------|----------|----------|----------|----------|
| 成分組成とその重量部数 | ビスフェノールA型エポキシ樹脂(A) | 50 | 50 | 50 | 50 | 30 |
| | (A) 以外のエポキシ樹脂 | 50 | 50 | 50 | 50 | 50 |
| | ハロゲン化ビスAエポキシ | — | — | — | — | 20 |
| | 三酸化アンチモン | — | — | — | — | 4 |
| | 赤リン | — | — | — | 15 | — |
| | トリアジン環含有フェノール樹脂(B) | — | 70 | 70 | — | — |
| | (B) 以外のフェノール樹脂 | 40 | — | — | — | — |
| | 水和アルミナ | 140 | 170 | — | 90 | 100 |
| | 熔融シリカ | — | — | 170 | — | — |
| | 硬化促進剤 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| | 無機イオン交換体 | 1 | — | — | 1 | — |
| | マキシアスレート化合物 (1) | — | 8 | — | — | — |
| | シランカップリング剤 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 |
| | 表面改質剤 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 |
| | カーボンブラック | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 |
| 難燃性 UL-94 | | HB | V-0 | V-0 | V-0 | V-0 |
| 難燃性 UL-1414 (片側膜厚0.8~0.8mm) | | × | ○ | × | × | × |
| 耐湿後のコンデンサ誘電正接(85℃/85%RH) 1500時間経過後 | | 1.7% | 4.0% | 3.5% | 4.8% | 2.6% |

[0057] The epoxy resin constituent of this invention discovered the outstanding fire retardancy and the outstanding moisture resistance so that more clearly than Table 1 and 2. Furthermore, when covering the film capacitor with the epoxy resin constituent of this invention, the spread of a fire on a film was able to be prevented.

[0058]

[Effect of the Invention] Even if the epoxy resin constituent of this invention does not contain environmental loading material, such as a halogen series flame retardant, a phosphorus series flame retardant, and an antimony system flame retarder, it discovers the fire retardancy which was excellent as compared with the conventional fire-resistant epoxy resin constituent, and has the capacity which prevents the spread of a fire on a film at the time of mounting in the electrical insulating characteristic which was moreover excellent and humidity-tolerant reliability, and a film capacitor.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] (A) The epoxy resin constituent which comes to contain an epoxy resin, (B) triazine ring content phenol system curing agent, the (C) inorganic bulking agent, the (D) inorganic ion exchanger, (E) melamine SHIANU rate compound, and the (F) hardening accelerator.

[Claim 2] The film capacitor which it comes to cover with an epoxy resin constituent according to claim 1.

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-226438

(P2000-226438A)

(43) 公開日 平成12年8月15日 (2000.8.15)

| (51) Int.Cl. ⁷ | 識別記号 | F I | キーワード (参考) |
|---------------------------|--------|---------------|------------|
| C 0 8 G 59/62 | | C 0 8 G 59/62 | 4 J 0 0 2 |
| C 0 8 K 3/00 | | C 0 8 K 3/00 | 4 J 0 3 6 |
| | 5/3477 | 5/3477 | |
| C 0 8 L 63/00 | | C 0 8 L 63/00 | C |

審査請求 未請求 請求項の数 2 O L (全 6 頁)

(21) 出願番号 特願平11-26602

(22) 出願日 平成11年2月3日 (1999.2.3)

(71) 出願人 391003624

サンユレジン株式会社

大阪府高槻市道場町3丁目5番1号

(72) 発明者 上田 兼司

大阪府高槻市道場町3-5-1 サンユレジン株式会社内

(72) 発明者 北川 秀雄

大阪府高槻市道場町3-5-1 サンユレジン株式会社内

(74) 代理人 100065215

弁理士 三枝 英二 (外10名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 難燃性エポキシ樹脂組成物

(57) 【要約】

【課題】 優れた難燃性を発現し、しかも優れた電気絶縁特性および耐湿信頼性を有するエポキシ樹脂組成物を提供する。

【解決手段】 (A) エポキシ樹脂、(B) トリアジン環含有フェノール系硬化剤、(C) 無機充填剤、(D) 無機イオン交換体、(E) メラミンシアヌレート化合物および (F) 硬化促進剤を含有してなるエポキシ樹脂組成物。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 (A)エポキシ樹脂、(B)トリアジン環含有フェノール系硬化剤、(C)無機充填剤、(D)無機イオン交換体、(E)メラミンシアヌレート化合物および(F)硬化促進剤を含有してなるエポキシ樹脂組成物。

【請求項2】 請求項1に記載のエポキシ樹脂組成物で被覆されてなるフィルムコンデンサ。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、特に電気絶縁用として有用で、ハロゲン、アンチモンを含まず、フィルムコンデンサに実装時に比較的薄膜でもコンデンサ自身を燃焼させない難燃性エポキシ樹脂組成物に関する。

【0002】

【従来の技術】コンデンサやコイルの絶縁被覆等に用いるエポキシ樹脂組成物の目的としては、絶縁性の保持はもちろん、難燃性の付与も重要である。

【0003】このため、従来は、ハロゲン化合物を添加したり、ハロゲン原子を分子中に有するエポキシ樹脂とアンチモン化合物を併用したり、燐化合物を難燃剤として使用している。

【0004】これらの化合物は、良好な難燃性を発現する一方で、燃焼時に有害なハロゲン化水素等の有害性ガスを発生する。また、ダイオキシンの発生が疑われるハロゲン系難燃剤や、発癌性の可能性が指摘されているアンチモン化合物の使用が抑制される傾向にある。このような傾向に対応して、種々の代替難燃剤が検討されている。

【0005】しかしながら、例えば金属水和物を用いる場合には、充分な難燃性を発現させるためには大量に添加せねばならず、樹脂の硬化性や硬化物の強度等に問題がある。また、従来の窒素含有難燃系では、電子部品として実装したときの電氣的信頼性(特に耐湿電気特性)に劣り、電子部品封止用としての実用的な要求に耐え得るものではない。

【0006】また、コンデンサに被覆塗装した時に、厚く塗装すればコンデンサ自身は燃焼しないが、薄く塗装した場合に炎があたるとクラックを発生し、中のフィルムに延焼してコンデンサ自身が燃焼してしまう。その塗膜が薄くてもコンデンサ自身の燃焼を防ぐ性能を付与するエポキシ樹脂組成物は知られていない。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、ハロゲン化合物、燐化合物、アンチモン化合物等の環境負荷物質を含まずに、難燃性、電氣的信頼性に優れ、フィルムコンデンサに実装時にフィルムへの延焼を防ぐ難燃性エポキシ樹脂組成物を提供することを目的とする。

【0008】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、前記目的

を達成するために鋭意研究したところ、エポキシ樹脂、トリアジン環含有フェノール系硬化剤、無機充填剤、無機イオン交換体、メラミンシアヌレート化合物および硬化促進剤を含有してなるエポキシ樹脂組成物が優れた難燃性、電気絶縁特性、耐湿信頼性を有することを見出し、本発明を完成した。

【0009】すなわち、本発明は、下記に示すとおりのエポキシ樹脂組成物およびフィルムコンデンサを提供するものである。

10 【0010】1. (A)エポキシ樹脂、(B)トリアジン環含有フェノール系硬化剤、(C)無機充填剤、(D)無機イオン交換体、(E)メラミンシアヌレート化合物および(F)硬化促進剤を含有してなるエポキシ樹脂組成物。

【0011】2. 上記項1に記載のエポキシ樹脂組成物で被覆されてなるフィルムコンデンサ。

【0012】

【発明の実施の形態】本発明のエポキシ樹脂組成物は、(A)エポキシ樹脂、(B)トリアジン環含有フェノール系硬化剤、(C)無機充填剤、(D)無機イオン交換体、(E)メラミンシアヌレート化合物および(F)硬化促進剤を必須成分として含有し、必要に応じて、その他の成分(例えば、表面改質剤、カップリング処理剤、流れ剤、顔料、カルナバワックス、レーザーマーク発色剤等)を、本発明の目的に反しない範囲において、含有することができる。

【0013】(A)エポキシ樹脂

エポキシ樹脂としては、1分子中に2個以上のエポキシ基を有するエポキシ樹脂を使用するのが好ましい。このようなエポキシ樹脂としては、例えば、ビスフェノール型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、トリフェノールメタン型エポキシ樹脂等が挙げられる。好ましいエポキシ樹脂は、ビスフェノール型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂等である。エポキシ樹脂としては、1種単独を使用しても良いし、2種以上を組み合わせて使用しても良い。エポキシ樹脂組成物の使用用途により、エポキシ樹脂の種類、割合を適宜調整して使用するのが好ましい。例えば、硬化物に高いガラス転移温度が要求される場合には、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂の割合を増やすのが好ましい。

【0014】エポキシ樹脂組成物中のエポキシ樹脂の含有量は、20~50重量%程度、好ましくは30~40重量%程度とすることができる。

【0015】(B)硬化剤

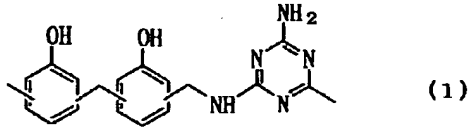
硬化剤としては、トリアジン環含有フェノール系硬化剤を必須の硬化剤として使用する。このトリアジン環含有フェノール系硬化剤は、エポキシ樹脂組成物に難燃性を付与するのに役立つ。トリアジン環含有フェノール系硬化剤は、1分子中にフェノール性水酸基を2個以上有

し、その平均水酸基当量が100~350であるのが好ましく、110~250であるのがより好ましい。

【0016】このようなトリアジン環含有フェノール系硬化剤としては、例えば、式

【0017】

【化1】



【0018】で表されるような、1分子中にフェノール性水酸基を2個以上有し、かつトリアジン環を分子構造中に有するフェノールノボラック樹脂が好ましい。

【0019】トリアジン環含有フェノール系硬化剤は、例えば、メラミンとフェノールとホルムアルデヒドとを反応させて得ることができる。また、ベンゾグアナミンを用いて窒素量を調整しても良い。

【0020】トリアジン環含有フェノール系硬化剤の使用量は、エポキシ樹脂100重量部に対して、35~80重量部程度、好ましくは45~60重量部程度とすることができる。

【0021】また、硬化剤としては、上記のトリアジン環含有フェノール系硬化剤とともに、フェノールノボラック樹脂、ビスフェノールA、ビスフェノールF等のフェノール性水酸基を有する硬化剤を併用しても良い。また、酸無水物系硬化剤を併用しても良い。酸無水物系硬化剤としては、無水トリメリット酸、無水ピロメリット酸等の公知のものが広く使用できる。

【0022】エポキシ樹脂に対する硬化剤の配合割合は、エポキシ樹脂1に対して硬化剤を化学当量で0.7~1.2程度、さらには0.8~1.0程度配合することが好ましい。すなわち、全硬化剤中の官能基数と全エポキシ樹脂中のエポキシ基数の比(官能基数/エポキシ基数)が0.7~1.2程度、さらには0.8~1.0程度の範囲内となるように配合量が設定されることが好ましい。配合量がこの範囲内にあるときに、物理的強度や電気特性における能力を最大限に発揮することができる。

【0023】(C) 無機充填剤

無機充填剤としては、公知のものをいずれも使用することができる。無機充填剤としては、例えば、溶融シリカ粉末、球状溶融シリカ粉末、結晶シリカ粉末、水和マグネシア、水和アルミナ、タルク、炭酸カルシウム等が挙げられる。

【0024】難燃性を考慮すると、水和マグネシア、水和アルミナ等の酸化金属水和物類が好ましい。一方、半田クラック性やヒートサイクル性が重要視される分野等においては、他の無機充填剤を使用することができる。エポキシ樹脂組成物を使用する用途に応じ、各種の無機

充填剤を組み合わせ使用することができる。

【0025】無機充填剤の使用量は、エポキシ樹脂100重量部に対して、60~300重量部程度、好ましくは100~220重量部程度とすることができる。

【0026】好ましい実施の形態では、流動性や溶融粘度等の点から、エポキシ樹脂組成物中の無機充填剤の含有量を、30~70重量%程度、好ましくは40~60重量%程度とする。この範囲に充たないときは、吸水性が大きくなって物理特性が劣る傾向がある。一方、この範囲を超えときは、流動性が悪くなり、成形性に悪影響を及ぼして外観不良の原因となる傾向がある。

【0027】(D) 無機イオン交換体

本発明のエポキシ樹脂組成物は、耐湿性改良剤として無機イオン交換体を含有する。

【0028】無機イオン交換体とは、構成成分中に-OH基を有する無機イオン交換性物質であり、無機陰イオン交換体、無機陽イオン交換体、無機両イオン交換体が挙げられる。これらの無機イオン交換体は、例えば、多価金属酸、その塩、多価金属含水酸化物等で構成される。

【0029】無機イオン交換体は、イオンの総交換容量が1~10meq/gであるのが好ましく、3~7meq/gであるのがより好ましい。

【0030】イオンの交換容量を求めるには、例えば、塩素イオンの交換容量の場合には、無機イオン交換体1gを0.1N-HCl/0.1N-NaCl混合溶液50mlに添加し、24時間振とう攪拌した後、液中の塩素イオン濃度とpHを測定して求めることができる。また例えば、ナトリウムイオンの交換容量を求める場合には、無機イオン交換体0.5gを0.1N-NaOH/0.1N-NaCl混合溶液50mlに添加し、24時間攪拌した後、液中のナトリウムイオン濃度とpHを測定して求めることができる。

【0031】無機イオン交換体としては、アルミニウム系、ジルコニウム系、マグネシウム-アルミニウム系等の陰イオン交換体；ジルコニウム系、チタン系等の陽イオン交換体；カルシウム系等の両イオン交換体等が挙げられるが、陰イオン交換体の使用が好ましい。陰イオン交換体の中では、マグネシウム-アルミニウム系の使用が最も効果を発揮する。

【0032】無機イオン交換体の使用量は、エポキシ樹脂100重量部に対して、0.01~5重量部程度、好ましくは0.5~3重量部程度とすることができる。この範囲に充たないときは、耐湿時の電気特性の劣化を防ぐことが困難となる傾向がある。一方、この範囲を超えときは、硬化物の物性の低下等が起こる傾向がある。

【0033】(E) メラミンシアヌレート化合物

本発明のエポキシ樹脂組成物は、難燃助剤としてメラミンシアヌレート化合物を含有する。メラミンシアヌレート化合物としては、式： $C_3H_6N_6 \cdot C_3H_3N_3O_3$ で表

されるメラミンシアヌレート（メラミン・イソシアヌル酸付加物）およびその誘導体が好ましい。

【0034】このメラミンシアヌレート化合物は、エポキシ樹脂組成物の燃焼時には空気を遮断する被膜を形成するのに役立つ。また、エポキシ樹脂組成物をフィルムコンデンサに実装した場合には、コンデンサ中のフィルムへの延焼を防ぎ、コンデンサ自身の難燃化に役立つ。

【0035】メラミンシアヌレート化合物の使用量は、エポキシ樹脂100重量部に対して、1～10重量部程度、好ましくは3～7重量部程度とすることができる。

【0036】(F) 硬化促進剤

硬化促進剤としては、例えば、イミダゾール、変性イミダゾール、第三級アミン、トリフェニルホスフィン、ジアザビシクロウンデセン等の広く使用されている公知の硬化促進剤を1種単独で使用しても良いし、2種以上を組み合わせて使用しても良い。好ましい硬化促進剤は、イミダゾール、変性イミダゾール、トリフェニルホスフィンである。

【0037】硬化促進剤の使用量は、エポキシ樹脂100重量部に対して、0.3～4重量部程度、好ましくは1.5～3重量部程度とすることができる。

【0038】本発明のエポキシ樹脂組成物には、必要に応じて、表面改質剤、カップリング処理剤、流れ剤、顔料、カルナバワックス、レーザーマーク発色剤等の補助的成分を添加しても良い。

【0039】本発明のエポキシ樹脂組成物は、一般的な製造施設を用いて一般的な製造方法により製造可能である。例えば、ロールによる混合や、ブラネタリーミキサー等のミキサー類による混合の後、真空脱泡を行うのみで製造可能である。本発明のエポキシ樹脂組成物を粉体塗料として製造する場合でも、一般的な製造方法で製造可能である。例えば、各配合成分をミキサー等によって混合攪拌して、押し出し溶融混練攪拌機等で溶融混合攪拌し、得られる混合物を冷却固化させた後に、粉碎機等で粉碎し、分級処理すれば良い。

【0040】本発明のエポキシ樹脂組成物は、ハロゲン系難燃剤、燐系難燃剤、アンチモン系難燃剤等を含有しなくとも、従来の難燃性エポキシ樹脂組成物と比較して優れた難燃性を発現し、しかも優れた電気絶縁特性および耐湿信頼性を有する。

【0041】本発明のエポキシ樹脂組成物は、特に粉体塗料として使用した場合に、半導体封止材、電子部品の絶縁材等の用途に適する。本発明のエポキシ樹脂組成物は、例えば、セラミックコンデンサ、フィルムコンデンサ、抵抗ネットワーク、コイル等、特にフィルムコンデンサの塗装に用いる塗料として特に適する絶縁封止用の難燃性組成物である。

【0042】特に、本発明のエポキシ樹脂組成物は、UL-1414難燃規格に合格するので、コンデンサに実装した場合には、コンデンサ自身の燃焼を防ぐことがで

きる。この性能は、塗装膜厚が薄い場合（膜厚0.6～0.8mm）でも、発揮できる。

【0043】本発明のエポキシ樹脂組成物を用いてフィルムコンデンサを製造するには、例えば、フィルムコンデンサ素子を100～120℃程度に予熱し、これに粉体エポキシ樹脂組成物を流動浸漬法粉体塗装機を用いて塗装した後に、100～120℃程度で本硬化させれば良い。

【0044】

【実施例】以下、実施例によって本発明をさらに具体的に説明する。

【0045】実施例1～7

表1に示す組成（重量部）の混合物をミキサーによって混合攪拌し、押し出し溶融混練攪拌機で溶融混合攪拌し、得られた混合物を冷却固化させた後に、粉碎機で粉碎し、分級処理を施してエポキシ樹脂組成物を得た。

【0046】なお、エポキシ樹脂と硬化剤の当量が1：1となるように統一し、無機充填剤（水和アルミナ、溶融シリカ）の配合量は、エポキシ樹脂と硬化剤との合計量と等しくした。

【0047】各成分の詳細は、次の通りである。

【0048】・ビスフェノールA型エポキシ樹脂

(A)：油化シェルエポキシ社製、商品名エビコート1002

・(A)以外のエポキシ樹脂（クレゾールノボラック型エポキシ樹脂）：油化シェルエポキシ社製、商品名エビコート180S65

・トリアジン環含有フェノール樹脂（B）：大日本インキ社製、商品名KA-7055、平均水酸基当量220

・(B)以外のフェノール樹脂（フェノールノボラック型樹脂）：大日本インキ社製、商品名TD-2131

・酸無水物硬化剤（ベンゾフェノンテトラジカルボン酸無水物）：アルコ社製、商品名BTDA

・水和アルミナ：昭和電工社製、商品名H-31

・溶融シリカ：龍森社製、商品名RD-8

・硬化促進剤（トリフェニルホスフィン）：シーアイ化成社製、商品名PP-360

・無機イオン交換体：東亜合成社製、商品名IXE-700、Cl⁻総交換容量4.3meq/g

・メラミンシアヌレート化合物（1）：日産化学社製、商品名MC-410

・メラミンシアヌレート化合物（2）：日産化学社製、商品名MC-420

・シランカップリング剤：チッソ社製、商品名サイラエースS-510

・表面改質剤：共栄化学社製、商品名ミキレベリングMKコンク

・カーボンブラック：三菱化学社製、商品名MA-100。

【0049】これらのエポキシ樹脂組成物について、以

下のようにして諸特性を評価した。結果を表1に示す。

【0050】・難燃性試験

UL-94

樹脂組成物を硬化させて厚さ1.0mmの試験片を作製し、UL-94難燃規格に定められている試験条件で硬化物の難燃性の判定試験を行った。V-0は難燃レベルをクリアしていることを示し、HBは難燃レベルをクリアしていないことを示す。

【0051】UL-1414

フィルムコンデンサ素子を100℃に設定したクバイエスベック社製循環式恒温槽に投入して60分子熟し、これに粉体エポキシ樹脂組成物を精研社製の流動浸漬法粉体塗装機を用いて塗装した。樹脂組成物の塗装膜厚は片側において0.6～0.8mmとなるようにした。この塗装したフィルムコンデンサを、上記恒温槽において120℃/90分で本硬化させた。得られたフィルムコンデンサについて、UL-1414難燃規格に定められている試験条件で樹脂硬化物（フィルムコンデンサ）の難

表1

| | 実施例 1 | 実施例 2 | 実施例 3 | 実施例 4 | 実施例 5 | 実施例 6 | 実施例 7 |
|--|----------|----------|----------|----------|----------|----------|----------|
| ビスフェノールA型 エポキシ樹脂(A) | 100 | — | 50 | 50 | 50 | 50 | 50 |
| (A) 以外のエポキシ樹脂 | — | 100 | 50 | 50 | 50 | 50 | 50 |
| トリアジン環含有 フェノール樹脂(B) | 60 | 80 | 70 | 50 | 35 | 50 | 70 |
| (B) 以外のフェノール樹脂 | — | — | — | 10 | 20 | — | — |
| 成分組成とその重量部数 | | | | | | | |
| 酸無水物硬化剤 | — | — | — | — | — | 30 | — |
| 水和アルミナ | 160 | 180 | 170 | — | 155 | 180 | 170 |
| 熔融シリカ | — | — | — | 160 | — | — | — |
| 硬化促進剤 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| 無機イオン交換体 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 |
| アミンシアレート 化合物(1) | 8 | 8 | 4 | 8 | 8 | 8 | — |
| アミンシアレート 化合物(2) | — | — | — | — | — | — | 8 |
| シランカップリング剤 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 |
| 表面改質剤 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 |
| カーボンブラック | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 |
| 難燃性 UL-94 | V-0 | V-0 | V-0 | V-0 | V-0 | V-0 | V-0 |
| 難燃性 UL-1414 (片側膜厚0.6～0.8mm) | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |
| 耐湿後のエデンガ誘電 正接(85℃/85%RH) 1500時間経過後 | 1.7% | 1.7% | 1.7% | 1.7% | 1.8% | 1.7% | 1.7% |

* 燃性の試験を行った。○はフィルムに延焼しなかったことを示し、×はフィルムに延焼したことを示す。

【0052】・耐湿性試験

フィルムコンデンサ素子に、上記UL-1414と同様にしてエポキシ樹脂組成物を塗装して硬化したものを、85℃/85%RHの恒温恒湿槽中に放置し、1500時間経過後のコンデンサ誘電正接を測定した。この値が小さいほど、優れた電子部品用絶縁材料である。

【0053】比較例1～5

表2に示す組成（重量部）の混合物を実施例1～7と同様に処理して、エポキシ樹脂組成物を得た。これらのエポキシ樹脂組成物について、実施例1～7と同様にして諸特性を評価した。結果を表2に示す。

【0054】なお、比較例4、5の組成物は、その構成成分から明らかなように環境負荷物質（リン、ハロゲン化合物、三酸化アンチモン等）を含有する。

【0055】

【表1】

表 2

| | | 比較例 | 比較例 | 比較例 | 比較例 | 比較例 |
|-------------|--|------|------|------|------|------|
| | | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 |
| 成分組成とその重量部数 | ビスフェノールA型 エポキシ樹脂(A) | 50 | 50 | 50 | 50 | 30 |
| | (A) 以外のエポキシ樹脂 | 50 | 50 | 50 | 50 | 50 |
| | ハロゲン化ビスAエポキシ | — | — | — | — | 20 |
| | 三酸化アンチモン | — | — | — | — | 4 |
| | 赤リン | — | — | — | 15 | — |
| | トリアジン環含有 フェノール樹脂(B) | — | 70 | 70 | — | — |
| | (B) 以外のフェノール樹脂 | 40 | — | — | — | — |
| | 水和アルミナ | 140 | 170 | — | 90 | 100 |
| | 溶融シリカ | — | — | 170 | — | — |
| | 硬化促進剤 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| | 無機イオン交換体 | 1 | — | — | 1 | — |
| | アミンアミレート 化合物 (1) | — | 8 | — | — | — |
| | シランカップリング剤 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 |
| | 表面改質剤 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 |
| | カーボンブラック | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 |
| | 難燃性 UL-94 | HB | V-0 | V-0 | V-0 | V-0 |
| | 難燃性 UL-1414 (片側膜厚0.6~0.8mm) | × | ○ | × | × | × |
| | 耐湿後のエデンガ断電 正接(85℃/85%RH) 1500時間経過後 | 1.7% | 4.0% | 3.5% | 4.8% | 2.6% |

【0057】表1および表2より明らかなように、本発明のエポキシ樹脂組成物は優れた難燃性と耐湿性を発現した。さらに、本発明のエポキシ樹脂組成物でフィルムコンデンサを被覆すれば、フィルムへの延焼を防ぐことができた。

【0058】

*【発明の効果】本発明のエポキシ樹脂組成物は、ハロゲン系難燃剤、燐系難燃剤、アンチモン系難燃剤等の環境負荷物質を含有しなくとも、従来の難燃性エポキシ樹脂組成物と比較して優れた難燃性を発現し、しかも優れた電気絶縁特性および耐湿信頼性、フィルムコンデンサに実装時にはフィルムへの延焼を防ぐ能力を有する。

フロントページの続き

(72)発明者 上野 健司
大阪府高槻市道鶴町3-5-1 サンユレ
ジン株式会社内
(72)発明者 上野 健一
大阪府高槻市道鶴町3-5-1 サンユレ
ジン株式会社内

Fターム(参考) 4J002 CD051 CD061 CD071 DE077
DE098 DE147 DE188 DE237
DJ017 DJ047 EN009 EU099
EU119 EU186 EU199 EW019
FD017 FD146 FD159 GQ01
4J036 AA01 AD01 AF01 AF06 AF07
DC45 FA01 FA05 FA12 JA07